

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

## ULTRAVIOLET ABSORBER INCLUDED MICROCAPSULE, PREPARATION THEREOF AND COSMETICS CONTAINING SAME MICROCAPSULE

No. Publication (Sec.) : JP2251240  
Date de publication : 1990-10-09  
Inventeur : SHIMAI YOSHIYUKI  
Déposant :: PIAS ARISE KK  
Numéro original : ☐ JP2251240  
No. d'enregistrement : JP19890072234 19890324  
No. de priorité :  
Classification IPC : B01J13/02 ; A61K7/00 ; A61K7/42 ; C09K3/00  
Classification EC :  
Brevets correspondants :

### Abrégé

**PURPOSE:** To enhance the absorption and shielding effect of ultraviolet rays harmful to the skin by forming a microcapsule by including a specific dibenzoylmethane derivative in a spherical particle having a mean particle size of 0.1-30µm based on silica.

**CONSTITUTION:** A dibenzoylmethane derivative represented by formula I (wherein X and Y are respectively same or different and a 1-18C alkyl group, an alkoxy group, a carboxyl group or halogen, m and n are an integer of 0-3 and k+1 is an integer of 1-4) is dissolved in an aqueous solution of alkali metal silicate. This aqueous solution and an org. solvent whose solubility to water and the dibenzoylmethane derivative is 5% or less are mixed to prepare a W/O type emulsion. After an acidic aqueous solution is compounded with this emulsion, said emulsion is filtered, washed with water and dried to prepare an ultraviolet absorber included microcapsule composed of a spherical fine particle having a mean particle size of 0.1-30µm.

Données fournies par la base d'esp@cenet - I2

## ⑫ 公開特許公報(A)

平2-251240

⑬ Int.Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑭ 公開 平成2年(1990)10月9日

B 01 J 13/02

A 61 K 7/00

C 09 K 3/00

T

7306-4C

6971-4C

7327-4H

8317-4G

B 01 J 13/02

L

審査請求 未請求 請求項の数 3 (全11頁)

⑮ 発明の名称 紫外線吸収剤内包マイクロカプセル及びその製造方法並びにそのマイクロカプセルを含有する化粧料

⑯ 特 願 平1-72234

⑰ 出 願 平1(1989)3月24日

⑱ 発 明 者 島 居 義 侑 大阪府高槻市淀の原町50-1

⑲ 出 願 人 ビアス株式会社 大阪府大阪市北区豊崎3丁目21番3号

⑳ 代 理 人 弁理士 藤 本 昇

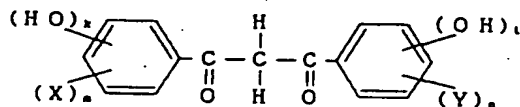
## 明 細 書

## 1. 発明の名称

紫外線吸収剤内包マイクロカプセル及びその製造方法並びにそのマイクロカプセルを含有する化粧料

## 2. 特許請求の範囲

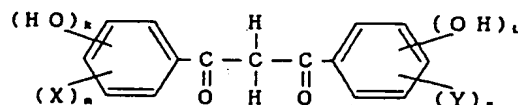
## 1. 一般式



(式中m個のX及びn個のYは各々同一又は異なる炭素数1～18のアルキル基、アルコキシ基、カルボキシ基、又はハロゲンを示し、且つm及びnは0～3の整数を示し、k+1は1～4の整数を示す)で表されるジベンゾイルメタン誘導体を、シリカを主成分とする平均粒径が0.1～30 $\mu$ mの球状微粒子中に内包せしめたことを特徴とする紫外線吸収剤内包

マイクロカプセル。

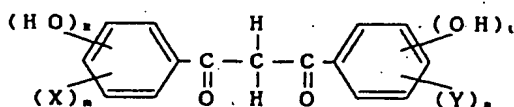
## 2. 一般式



(式中m個のX及びn個のYは各々同一又は異なる炭素数1～18のアルキル基、アルコキシ基、カルボキシ基、又はハロゲンを示し、且つm及びnは0～3の整数を示し、k+1は1～4の整数を示す)で表されるジベンゾイルメタン誘導体を、アルカリ金属のケイ酸塩水溶液中に溶解し、その水溶液と、水及び前記ジベンゾイルメタン誘導体に対する溶解度が5%以下の有機溶媒とを混合してW/O型乳濁液とし、次に前記アルカリ金属のケイ酸塩及びジベンゾイルメタン誘導体のアルカリ溶解物との中和反応により、水不溶性沈澱を生成しうる酸性水溶液を前記乳濁液と混合し、

その後、必要に応じて濾過、水洗、乾燥することにより、前記ジベンゾイルメタン誘導体を、シリカを主成分とする平均粒径が $0.1 \sim 30 \mu\text{m}$ の球状微粒子中に内包せしめて製造することを特徴とする紫外線吸収剤内包マイクロカプセルの製造方法。

### 3. 一般式



(式中  $m$  個の  $X$  及び  $n$  個の  $Y$  は各々同一又は異なる炭素数  $1 \sim 18$  のアルキル基、アルコキシ基、カルボキシ基、又はハロゲンを示し、且つ  $m$  及び  $n$  は  $0 \sim 3$  の整数を示し、 $k+1$  は  $1 \sim 4$  の整数を示す) で表されるジベンゾイルメタン誘導体を、シリカを主成分とする平均粒径が $0.1 \sim 30 \mu\text{m}$ の球状微粒子中に内包せしめたマイクロカプセルを含有してなるこ

そこで、このような種々の問題点を解決するために、従来より種々の紫外線吸収剤が開発されており、たとえば化粧品等にも含有されている。

とりわけ、化粧料の場合には皮膚に対する紫外線遮断の要請が大であり、従って、上記紫外線吸収剤(主として有機系のもの、たとえばパラアミノベンゾエート誘導体、ベンゾトリアゾール誘導体、ベンゾフェノン誘導体、シナメート誘導体等)の他、たとえば紫外線を反射しうる二酸化チタン、酸化亜鉛等の無機顔料を含有させることによって紫外線の経皮吸収を防止する化粧料も市販されている。

(発明が解決しようとする課題)

(イ) しかしながら、上記有機系の紫外線吸収剤を含有した化粧料の場合には、その紫外線吸収剤の化粧料基剤に対する相溶性や使用感が必ずしも良好なものではなかった。

さらに、皮膚に塗布した場合、紫外線吸収剤自体が皮膚に刺激を与える他、このような紫外線吸収剤が光エネルギーを吸収した場合におい

とを特徴とする化粧料。

### 3. 発明の詳細な説明

(産業上の利用分野)

本発明は、紫外線吸収剤を内包したマイクロカプセルと、そのマイクロカプセルの製造方法、並びにその紫外線吸収剤内包マイクロカプセルを含有する化粧料に関するものである。

(従来の技術)

周知のように、紫外線は皮膚に対して種々の影響をもたらすことが知られている。

すなわち、UV-B領域( $290 \sim 320\text{nm}$ )の紫外線は、皮膚に紅斑や水疱を生ぜしめ、炎症後に皮膚の黒化をもたらす。

又、UV-A領域( $320 \sim 400\text{nm}$ )の紫外線は、紅斑こそほとんど生じさせないものの、黒化をもたらす点ではUV-Bの紫外線の場合と同様である。

さらに、紫外線は、皮膚にシミ、ソバカス等の色素沈着を生じさせ、或いは皮膚の老化、変性をもたらす。

ても皮膚に一過性の刺激を与えるという問題があった。

いずれにしても、従来の紫外線吸収剤を含有する化粧料は、上記のようないずれかの問題点を具有していたために、実際に皮膚に使用するに際しては特定の種類のものに制限されていた。

(ロ) 一方、上記無機顔料を含有する化粧料の場合には、皮膚に対する刺激等については問題はないが、本来的に紫外線吸収効果を予定して化粧料に含有されたものではないため、紫外線を十分に遮蔽できず、紫外線の経皮吸収を防止できないという欠点がある。

特に、可視光線を遮蔽する領域の粒子径(粒子径が比較的大きいもの)の無機顔料を含有する化粧料は、紫外部での吸収が弱い。

これに対して、微粒子の二酸化チタンを配合した場合、その光散乱効果により、紫外線の遮蔽効果は得られるが、逆に上記光の散乱によって肌が白っぽく浮いた感じになる。しかも、肌への付着性が悪く、延展性に欠けるため、肌に

厚ぼったく付着し、従っていわゆるメイクアップの状態が透明感のない仕上がりとなる。

いずれにしても、従来では、紫外線の経皮吸収を防止し、しかも皮膚に対する安全性や相溶性等の種々の条件を充足する化粧料はほとんど開発されていなかったのである。

本発明は、上述のような問題点をすべて解決するためになされたもので、皮膚に有害な紫外線の吸収及び遮蔽効果が良好で皮膚への紫外線の経皮吸収を防止し、しかも、安全性、皮膚への付着力、延展性に優れ、且つ使用感、透明感に優れた化粧料を提供することを課題とするものである。

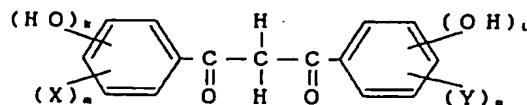
(課題を解決するための手段)

本発明者等は、このような課題を解決するために鋭意研究を行った結果、ある種の有機系紫外線吸収剤を、ある種の無機系球状微粒子に内包せしめてマイクロカプセル化し、これを化粧料に配合すると、上記課題がすべて解決されることを見出し本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は、上記課題解決のために、

紫外線吸収剤内包マイクロカプセル、及びそのマイクロカプセルの製造方法、並びにそのマイクロカプセルを含有する化粧料としてなされたもので、マイクロカプセルとしての特徴は、

一般式



(式中m個のX及びn個のYは各々同一又は異炭素数1~18のアルキル基、アルコキシ基、カルボキシ基、又はハロゲンを示し、且つm及びnは0~3の整数を示し、k+1は1~4の整数を示す)で表されるジベンゾイルメタン誘導体を、シリカを主成分とする平均粒径が0.1~30 $\mu$ mの球状微粒子中に内包せしめたことにある。

又、マイクロカプセルの製造方法としての特徴は、上記化学構造を有するジベンゾイルメタン誘導体を、アルカリ金属のケイ酸塩水溶液中に溶解

し、その水溶液と、水及び前記ジベンゾイルメタン誘導体に対する溶解度が5%以下の有機溶媒とを混合してW/O型乳濁液とし、次に前記アルカリ金属のケイ酸塩及びジベンゾイルメタン誘導体のアルカリ溶解物との中和反応により水不溶性沈澱を生成しうる酸性水溶液を前記乳濁液と混合し、その後、必要に応じて濾過、水洗、乾燥することにより、前記ジベンゾイルメタン誘導体、シリカを主成分とする平均粒径が0.1~30 $\mu$ mの球状微粒子中に内包せしめて製造することにある。

さらに、化粧料としての特徴は、上記のようなマイクロカプセルを含有せしめたことにある。

尚、上記一般式で表されるジベンゾイルメタン誘導体としては、たとえば次のものが挙げられる。

- (イ) 4, 4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタン
- (ロ) 4-ヒドロキシ-4'-メトキシジベンゾイルメタン
- (ハ) 2, 4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタン

- (ニ) 2, 4-ジヒドロキシ-4'-メトキシジベンゾイルメタン
- (ホ) 2, 4-ジヒドロキシジベンゾイルメタン
- (ヘ) 4-ヒドロキシジベンゾイルメタン
- (ト) 2, 4, 4'-トリヒドロキシジベンゾイルメタン
- (チ) 4-ヒドロキシ-4'-メチルジベンゾイルメタン
- (リ) 2, 4-ジヒドロキシ-4'-クロルジベンゾイルメタン
- (ヌ) 4-ヒドロキシ-4'-クロルジベンゾイルメタン
- (ル) 2, 4'-ジヒドロキシ-4-メトキシジベンゾイルメタン
- (ヲ) 4-ヒドロキシ-3'-カルボキシジベンゾイルメタン

ただし、本発明におけるジベンゾイルメタン誘導体の種類は上記(イ)~(ヲ)に限定されるものではない。

さらに、本発明の上記マイクロカプセルの製造

方法において、アルカリ金属のケイ酸塩としては、たとえばJIS1号ケイ酸ナトリウム、JIS2号ケイ酸ナトリウム、JIS3号ケイ酸ナトリウム、メタケイ酸ナトリウム、ケイ酸カリウム( $K_2O \cdot nSiO_2$ ,  $n=2 \sim 3.8$ )等が例示される。

又、上記製造方法に用いる有機溶媒としては、 $n$ -ヘキサン、デカン、オクタン等の脂肪族飽和炭化水素、又はトルエン、ベンゼン、キシレン等の芳香族炭化水素、さらにはシクロヘキサン等の脂環式炭化水素等が挙げられる。

これら各溶媒は、勿論1種単独で、又は2種以上併用して使用することができる。

さらに、該製造方法に用いる乳化剤としては、好ましくはHLB値が3.5~6.0の範囲内にある非イオン界面活性剤の使用ができる。代表的なものとして、たとえばソルビタンセスキオレエート、ソルビタンモノオレエート、ポリオキシエチレンソルビタントリオレエート等がある。

さらに、該製造方法に用いる酸性水溶液として

は、硫酸イオンやリン酸イオン等、多価陰イオンを含有するものが好ましい。たとえば上記ジベンゾイルメタン誘導体が4、4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタン、4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタン等の場合には、反応終了後のpHが6付近である酸性水溶液が好ましく、又、その濃度は1.5 mol/l程度が好ましい。

ただし、上記アルカリ金属のケイ酸塩、有機溶媒、乳化剤、酸性水溶液等の種類は上記のものに限定されない。

(作用)

#### (1) 調製機構に関して

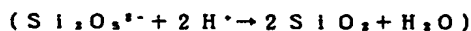
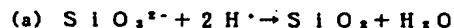
第1図は本発明のマイクロカプセルの微粒子生成過程を示す説明図である。

まず、ジベンゾイルメタン誘導体をアルカリ金属のケイ酸塩水溶液中に溶解し、その水溶液と有機溶媒とを混合すると、第1図(イ)に示すように、上記ジベンゾイルメタン誘導体とアルカリ金属のケイ酸塩水溶液との混合液を分散質1とし、有機溶媒を分散媒2とするW/O型

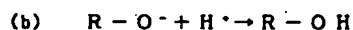
乳濁液が調製される。

次に、この乳濁液を上記酸性水溶液と混合する。

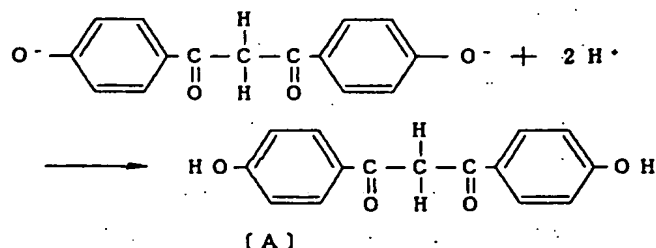
このとき、上記分散質1と酸性水溶液との界面において次の化学反応が生ずる。



及び



(ここでRはジベンゾイルメタン骨格を示す)



尚、上記(b)の反応において、Rがたとえば

4, 4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタンの場合は、上記(A)のような反応となる。

本発明における界面の化学反応は、上記の反応式のように反応し、この2つの化学反応が同時進行する共沈反応である。

しかしながら、反応速度の面で(a)の反応が(b)の反応より速く進行するため、先ず、上記界面においてシリカの薄膜3が形成され、その後時間の経過とともに、界面反応が内水相の内側に進行し、ジベンゾイルメタン誘導体の生成物4がシリカに内包された状態でマイクロカプセル5が製造されることとなるのである。

#### (2) 内包されたジベンゾイルメタン誘導体の溶出防止

上記反応機構で得られたシリカを主成分とする球状微粒子中にジベンゾイルメタン誘導体を内包せしめたマイクロカプセルには、多量の付着水分が含まれているため、ジベンゾイルメタン誘導体の変質しない程度に100℃以上の高温で乾燥することが好ましい。この操作によって、

内包されたジベンゾイルメタン誘導体の溶出が極力抑制されることとなるのである。

又、その後、必要に応じてシリコンオイル処理等の公知の表面処理を行うことも可能であり、内包されたジベンゾイルメタン誘導体の溶出が抑制される。

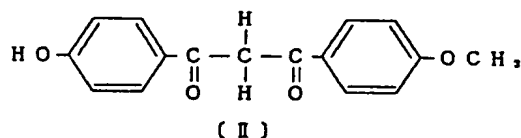
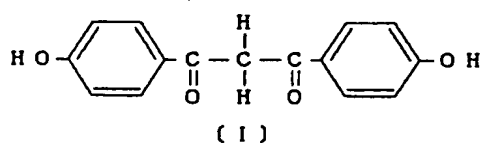
#### (実施例)

以下、本発明の実施例について説明する。

#### (マイクロカプセルの実施例)

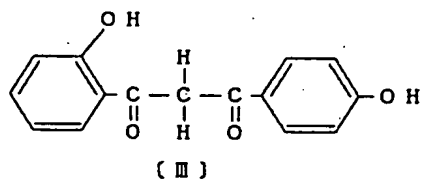
##### 実施例 1

本実施例は、本発明におけるジベンゾイルメタン誘導体の一例である4, 4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタンを内包するマイクロカプセルについての実施例である。



##### 実施例 3

本実施例は、本発明におけるジベンゾイルメタン誘導体の一例である2, 4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタンを内包するマイクロカプセルについての実施例である。



すなわち、本実施例におけるマイクロカプセルは、シリカを主成分とする球状微粒子中に、上記

すなわち、本実施例におけるマイクロカプセルは、シリカを主成分とする球状微粒子中に、上記〔I〕式の4, 4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタンを16.52重量%内包して構成されたもので、その平均粒子径は1.2 $\mu$ mである。

尚、本実施例のマイクロカプセルの走査電子顕微鏡写真を別紙参考写真に示す。走査電子顕微鏡としては、日本電子製のJSM-T220Aを用い、加速電圧30KV、倍率10000倍で撮影した。

##### 実施例 2

本実施例は、本発明におけるジベンゾイルメタン誘導体の一例である4-ヒドロキシ-4'-メトキシジベンゾイルメタンを内包するマイクロカプセルについての実施例である。

すなわち、本実施例のマイクロカプセルは、シリカを主成分とする球状微粒子中に、下記〔II〕式の4-ヒドロキシ-4'-メトキシジベンゾイルメタンを18.93重量%内包して構成されたもので、その平均粒子径は1.3 $\mu$ mである。

〔III〕式で示す2, 4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタンを22.93重量%内包して構成されたもので、その平均粒子径は1.7 $\mu$ mである。

尚、本発明のマイクロカプセルの粒子径は上記各実施例に限定されるものではなく、要は、そのマイクロカプセルの外壁を構成する球状微粒子の平均粒子径が0.1~30 $\mu$ mに形成されていればよい。

##### 参考例

上記実施例1~3のマイクロカプセルについて紫外線吸収スペクトルを測定し、且つすべり摩擦についての試験を行った。

##### (I) 紫外線吸収スペクトル

局方の白色ワセリン中に上記各実施例の試料粉末を10重量%加え、十分練り込んで分散させ、石英板の間に塗布し、厚み15 $\mu$ mとしてその紫外線吸収スペクトルを測定した。

その結果、第2図に示すように、上記各実施例のマイクロカプセルは、内包するジベンゾイルメタン誘導体の紫外線吸収スペクトルに相当

する吸収スペクトルを示し、経皮吸収との関係で問題となる紫外線に対して十分な吸収能を示している。

## (2) すべり摩擦

上記各実施例の試料を磨き板ガラスの上に薄く塗布し、さらにその上に200 gの分銅をのせた平らなガラス板を置き、パネばかりで水平に引いたとき、滑っている時点での引っ張り荷重の大きさを測定し、第3図のように棒グラフで示した。

その結果、一般の化粧品に含有されているタルク、セリサイト、ベンガラ、酸化チタンと比較してすべり摩擦が小さいことが認められた。

これは、マイクロカプセルが真球状を呈しているので、上記タルク等に比べ、ローリング効果(転動性)が良好であるためと推察される。

(マイクロカプセルの製造方法の実施例)

### 実施例4

本実施例は、上記実施例1の4, 4'-ジヒドロキシベンゾイルメタンを内包するマイクロ

カプセルを製造する方法についての実施例である。

まず、4, 4'-ジヒドロキシベンゾイルメタン6.0 gを、0.8 mol/lの1号ケイ酸ナトリウム溶液250 mlに溶解し、この水溶液をソルビタンセスキオレエートとポリオキシエチレンソルビタントリオレエートとの混合物(混合比4:1)の5%トルエン溶液400 mlに注ぎ、5分間ホモミキサーで乳化し、W/O型乳濁液を調製する。

次に、この乳濁液を0.6 mol/l硫酸アンモニウム、0.68 mol/lリン酸二水素ナトリウム及び0.12 mol/lリン酸水素二ナトリウムの混合水溶液1500 ml中に注入し、1時間攪拌し、1晩静置する。その後、遠心分離により固液分離した後、濾過、水洗し、150℃で乾燥を行う。

これによって、シリカを主成分とする球状微粒子中に4, 4'-ジヒドロキシベンゾイルメタンを16.52重量%内包する平均粒子径1.2 μmのマイクロカプセル28.8 gを得た。

### 実施例5

本実施例は、実施例2の4-ヒドロキシ-4'

-メトキシベンゾイルメタンを内包するマイクロカプセルを製造する方法についての実施例である。

まず、4-ヒドロキシ-4'-メトキシベンゾイルメタン5.0 gを、0.75 mol/lの1号ケイ酸ナトリウム溶液200 mlに溶解し、この水溶液をソルビタンセスキオレエートとポリオキシエチレンソルビタントリオレエートとの混合物(混合比3:1)の6%n-ヘキサン溶液350 mlに注ぎ、5分間ホモミキサーで乳化し、W/O型乳濁液を調製する。

次に、この乳濁液を1.25 mol/lリン酸二水素ナトリウムと0.25 mol/lリン酸水素二ナトリウムとの混合水溶液1200 ml中に注入し、1時間攪拌し、その後、上記実施例4と同様の操作を行い、シリカを主成分とする球状微粒子中に4-ヒドロキシ-4'-メトキシベンゾイルメタンを18.93重量%内包する平均粒子径1.3 μmのマイクロカプセル22.8 gを得た。

### 実施例6

本実施例は、実施例3の2, 4'-ジヒドロキシベンゾイルメタンを内包するマイクロカプセルを製造する方法についての実施例である。

まず、2, 4'-ジヒドロキシベンゾイルメタン8.0 gを、0.8 mol/lの1号ケイ酸ナトリウム溶液250 mlに溶解し、この水溶液をソルビタンモノオレエートとポリオキシエチレンソルビタンモノオレエートとの混合物(混合比6:1)の5%ベンゼン溶液400 mlに注ぎ、5分間ホモミキサーで乳化し、W/O型乳濁液を調製する。

次に、この乳濁液を0.6 mol/l硫酸アンモニウム、0.70 mol/lのリン酸二水素ナトリウム、及び0.1 mol/lリン酸水素二ナトリウムの混合水溶液1500 ml中に注入し、1時間攪拌する。その後、上記実施例4と同様の操作を行い、シリカを主成分とする球状微粒子中に2, 4'-ジヒドロキシベンゾイルメタンを22.93重量%内包する平均粒子径1.7 μmのマイクロカプセル30.8 gを得た。

(化粧料の実施例)

上記のようなマイクロカプセルは、皮膚に対す



る紫外線の悪影響を防止する目的で化粧料、医薬品等に配合することができる。

本発明のマイクロカプセルの化粧料への配合量は、化粧料の種類によっても異なるが、一般にはジベンゾイルメタン誘導体として0.1～20重量%、とりわけ0.5～10重量%になるようにするのが好ましい。

本発明の化粧料は、上記のようなマイクロカプセルを常法により公知の化粧料基剤に配合し、クリーム、溶液、スティック、乳液、ファンデーション、軟膏等の種々の剤型にすることにより調製される。

すなわち、上記のようなマイクロカプセルを化粧料基剤に合わせて選択使用することにより、オイル基剤の化粧油、多量にオイル基剤を配合する油性クリーム、油性乳液、水を多量に配合する弱油性クリームや弱油性乳液、水ベースの化粧水等の基礎化粧品から油剤を基剤とするファンデーションやリップスティック等の各種メーキャップ化粧料に至るまで、紫外線吸収効果を有するあらゆる

形態の化粧料を製造することが可能となる。

次に、本発明の化粧料の実施例について説明する。

#### 実施例 7

本実施例は、本発明のマイクロカプセルをいわゆるパウダーファンデーションに配合した化粧料についての実施例である。

すなわち、本実施例の化粧料の組成は次のとおりである。

成分	重量%
① 実施例 1 のマイクロカプセル	25.0
② タルク	残量
③ マイカ	30.0
④ 雲母チタン	1.0
⑤ 酸化チタン	8.0
⑥ ベンガラ	0.7
⑦ 黄酸化鉄	1.8
⑧ 黒酸化鉄	0.2
⑨ 結晶セルロース	0.2
⑩ メチルポリシロキサン	4.0

⑪ 流動パラフィン	3.0
⑫ スクワラン	4.0
⑬ 香料	適量
⑭ 防腐剤、酸化防止剤	微量

本実施例の化粧料を製造する場合には、上記①～⑭をヘンシェルミキサーでよくかきまぜながらこれにその他の成分を混合したものを均一に加え、粉碎機で処理し、圧縮成形することによって製造される。

本実施例の化粧料は、透明感、密着性があり、肌に薄く均一に付着することが可能であった。

又、紫外線遮蔽効果が極めて大であることが認められた。

しかも、従来の無機顔料を配合した化粧料のように、白っぽさが浮き出ることもない。

さらに、ソフトな使用感が得られるとともに、化粧持続性も良好であった。

#### 実施例 8

本実施例は、本発明のマイクロカプセルを油性ファンデーションに配合した化粧料についての実

施例である。

すなわち、本実施例の化粧料の組成は次のとおりである。

成分	重量%
① ミツロウ	11.0
② セレシン	1.0
③ ワセリン	3.0
④ パーセリンオイル	28.0
⑤ スクワラン	2.0
⑥ イソステアリン酸	4.0
⑦ 酸化チタン	28.0
⑧ 雲母チタン	4.0
⑨ タルク	5.0
⑩ ベンガラ	1.2
⑪ 黄酸化鉄	3.1
⑫ 黒酸化鉄	0.3
⑬ 実施例 2 のマイクロカプセル	10.0
⑭ 香料	適量
⑮ 防腐剤、酸化防止剤	微量

本実施例の化粧料を製造するには、先ず、①～

⑬を④の一部に加え、ローラーで処理する（顔料部）。又、他の部分を混合し、加熱融解した後、上記顔料部を加えてホモミキサーで均一に分散する。分散後、かきまぜながら50℃まで冷却する。

本実施例の化粧料は、紫外線遮蔽効果が大きく、使用感、透明感が優れている。

又、白さの浮き防止効果も優れており、化粧持続性も良好であった。

#### 実施例9

本実施例は、本発明のマイクロカプセルをW/O型クリームに配合した化粧料についての実施例である。

すなわち、本実施例の化粧料の組成は次のとおりである。

成分	重量%
① 固形パラフィン	5.0
② ミツロウ	5.0
③ ミクロクリスタリンワックス	10.0
④ ワセリン	10.0
⑤ スクワラン	35.0

#### 実施例10

本実施例は、本発明のマイクロカプセルをO/W型クリームに配合した化粧料についての実施例である。

すなわち、本実施例の化粧料の組成は次のとおりである。

成分	重量%
① ミツロウ	10.0
② ステアリルアルコール	5.0
③ 水添ラノリン	8.0
④ スクワラン	33.0
⑤ グリセリンモノステアレート	2.0
⑥ ポリオキシエチレン(20) ソルビタンモノラウレート	2.0
⑦ プロピレングリコール	5.0
⑧ 実施例2のマイクロカプセル	10.0
⑨ 精製水	残量
⑩ 香料	適量
⑪ 防腐剤、酸化防止剤	微量

本実施例の化粧料を製造するには、先ず、⑥に

⑥ ポリオキシエチレン(20) ソルビタンモノラウレート	1.0
⑦ ソルビタンセスキオレエート	5.0
⑧ 実施例1のマイクロカプセル	10.0
⑨ 精製水	残量
⑩ 香料	適量
⑪ 防腐剤、酸化防止剤	微量

本実施例の化粧料を製造するには、先ず、⑥に⑥を加え、加熱して80℃に保つ（水相）。又、他の成分を混合し、加熱融解して80℃に保つ（油相）。ホモミキサーで水相中の⑥を均一に分散させた後、油相に水相を加え、ホモミキサーで均一に乳化し、その乳化後に冷却しながら掻き混ぜることによって上記化粧料が製造される。

本実施例の化粧料は、紫外線遮蔽効果に優れ、従来の化粧料と比べて安全性が高い。

又、肌に均一に薄く付着し、密着性があり、しかも使用感、透明感が優れている。

又、白さの浮き防止効果も優れており、化粧持続性も良好であった。

⑦及び⑧を加え、加熱して70℃に保つ（水相）。又、他の成分を混合し、加熱融解して70℃に保つ（油相）。ホモミキサーで水相中の⑧を均一に分散させた後、水相に油相を加え、ホモミキサーで均一に乳化し、その乳化後に冷却しながら掻き混ぜることによって上記化粧料が製造される。

本実施例の化粧料は、紫外線遮蔽効果に優れ、従来の化粧料と比べて安全性が高い。

又、肌に均一に薄く付着し、密着性があり、しかも使用感、透明感が優れている。

又、白さの浮き防止効果も優れており、化粧持続性も良好であった。

#### 実施例11

本実施例は、本発明のマイクロカプセルをリップクリームに配合した化粧料についての実施例である。

すなわち、本実施例の化粧料の組成は次のとおりである。

成分	重量%
① 実施例1のマイクロカプセル	8.0

②	キャンデリラロウ	3.0
③	セレシン	15.0
④	レジナー	5.0
⑤	オクチルドデカノール	7.0
⑥	ジイソステアリアルアレート	35.0
⑦	トリ-2-エチルヘキサン酸 グリセリン	22.0
⑧	ジオクタン酸ネオペンチル グリコール	4.8
⑨	香料	適量
⑩	防腐剤、酸化防止剤	微量

本実施例の化粧料を製造するには、先ず、①を⑩の一部に加え、3本ローラーで処理し、顔料部とする。次に、他の成分を混合し、加熱融解した後、上記顔料部を加え、ホモミキサーで均一分散させる。そして、分散後に型に流し込んで急冷し、スティック状になったものを容器に差し込み、フレーミングを行う。

本実施例の化粧料は、紫外線遮蔽効果に優れ、従来の化粧料と比べて安全性が高い。

であるため、このようなマイクロカプセルを含有した化粧料の延展性は、無機顔料を含有した従来の化粧料に比べて非常に良好であり、肌に対して厚ぼったく付着することなく薄く均一に付着し、肌に負担をかけることがないという効果がある。

(ニ) しかも、このような化粧料においては、含有されているマイクロカプセルの外壁を構成する球状微粒子が、化粧料基剤中の油溶剤と光の屈折率が略等しいシリカで構成されているため、従来の酸化チタンを含有する化粧料のように光の散乱に基づき肌が白く浮き出たような印象を与えることがないという利点がある。

(ホ) 又、上記のような化粧料は透明感に優れ、プレス充填性に優れ、化粧持続性が良好であるという利点がある。

(ハ) さらに、本発明の製造方法においては、ジベンゾイルメタン誘導体を、アルカリ金属のケイ酸塩水溶液中に溶解し、その水溶液と有機溶媒とを混合してW/O型乳濁液とし、次に前記

又、唇に薄く均一に付着し、しかも使用感、透明感が優れている。

(発明の効果)

(イ) 叙上のように、本発明のマイクロカプセルは、紫外線吸収剤であるジベンゾイルメタン誘導体を、シリカを成分とする平均粒径が0.1~30 $\mu$ mの球状微粒子中に内包せしめて構成したものであるため、紫外線吸収剤が直接皮膚に接触することがなく、従って皮膚への刺激が軽減されることとなり、その安全性が従来の紫外線吸収剤に比べて大幅に高められることになるという顕著な効果がある。

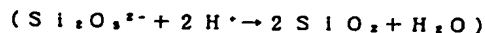
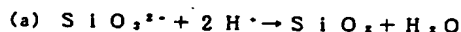
よって、このようなマイクロカプセルを含有した化粧料においても、皮膚に対する刺激緩和効果が得られるという利点がある。

(ロ) 又、マイクロカプセル自体が粉体であるので、従来の紫外線吸収剤の配合が困難であった化粧料基剤に対しても容易に配合することが可能になるという効果がある。

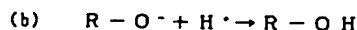
(ハ) さらに、マイクロカプセルが真球状の粉体

アルカリ金属のケイ酸塩及びジベンゾイルメタン誘導体のアルカリ溶解物との中和反応により水不溶性沈澱を生成しうる酸性水溶液を前記乳濁液と混合してマイクロカプセルを製造する方法なるため、前記ジベンゾイルメタン誘導体は、シリカを主成分とする球状微粒子中に内包されてマイクロカプセルが製造できることとなる。

特に、界面における次の共沈反応



及び



(ここでRはジベンゾイルメタン骨格を示す)において、上記(a)の反応が(b)の反応より速く進行するため、ジベンゾイルメタン誘導体が球状微粒子中に確実に内包され、従ってマイクロカプセルの製造が確実にできるという効果がある。

#### 4. 図面の簡単な説明

第1図はマイクロカプセルの製造過程を示す

説明図。

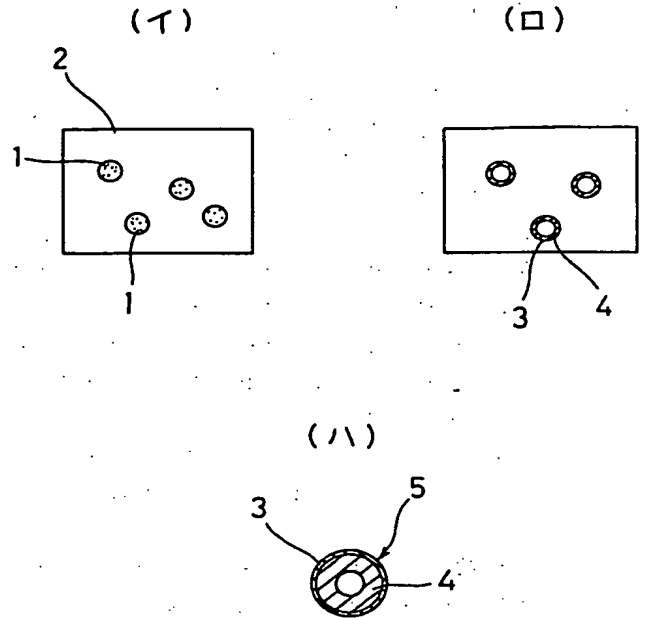
第2図は一実施例のマイクロカプセルの紫外線吸収スペクトルのチャート図。

第3図は一実施例のマイクロカプセルのすべり摩擦試験のグラフを示す。

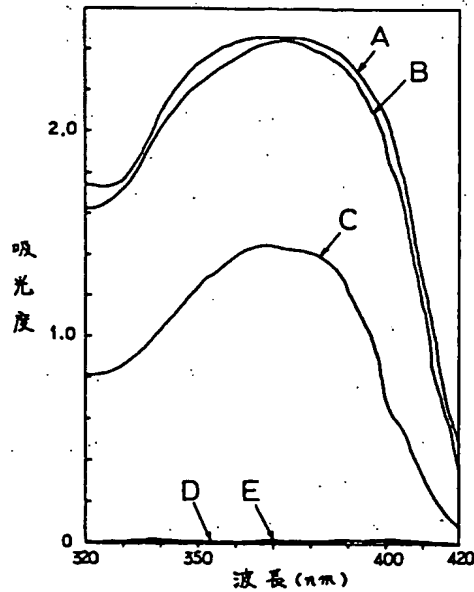
出願人 ビアス株式会社

代理人 弁理士 藤本昇

第 1 図

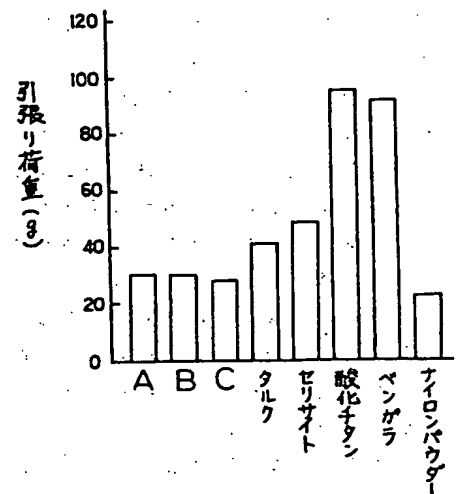


第 2 図



A: 実施例1のマイクロカプセル  
B: 実施例2のマイクロカプセル  
C: 実施例3のマイクロカプセル  
D: シリカ球状微粒子(平均粒径1.2 $\mu$ m)  
E: タルク

第 3 図



A: 実施例1のマイクロカプセル  
B: 実施例2のマイクロカプセル  
C: 実施例3のマイクロカプセル

自 免 手 続 補 正 書

平成 2年 6月 22日

特許庁長官 吉 田 文 毅 殿

1. 事件の表示

平成 01年特許願第 72234号

2. 発明の名称

紫外線吸収剤内包マイクロカプセル及びその製造方法並びにそのマイクロカプセルを含有する化粧料

3. 補正をする者

事件との関係 特許出願人

住 所

名 称 ビアス株式会社

4. 代 理 人

住 所 842 大阪 市中央区南船場2丁目5番8号  
長堀コミュニティビル  
電話 (06)271-7908

氏 名 (7433)弁理士 藤本 昇

5. 補正命令の日付 自 発

6. 補正により増加する発明の数

7. 補正の対象

明細書の発明の詳細な説明の欄。

8. 補正の内容

別紙の通り。

方 式 査 (関)



8. 補正の内容

- (1) 明細書第5頁第11行目の「紫外線の経皮吸収を防止する」を「紫外線を遮蔽する」に補正。
- (2) 明細書第6頁第11行目～第12行目の「遮蔽できず、紫外線の経皮吸収を防止できない」を「遮蔽できない」に補正。
- (3) 明細書第7頁第3行目～第4行目の「の経皮吸収を防止し」を「を遮蔽し」に補正。
- (4) 明細書第7頁第9行目～第10行目の「皮膚への紫外線の経皮吸収を防止し」を削除。
- (5) 明細書第12頁第3行目～第4行目の「4, 4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタン」を「4, 4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタン」に補正。
- (6) 明細書第12頁第4行目～第5行目の「4-ジヒドロキシジベンゾイルメタン」を「2, 4'-ジヒドロキシジベンゾイルメタン」に補正。
- (7) 明細書第19頁第1行目～第2行目の「経皮吸収との関係で問題となる」を削除。